

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re application of: **Hiroshi HAYASHI, et al.**

Serial No.: **Not Yet Assigned**

Filed: **January 22, 2002**

For: **PYROCHEMICAL REPROCESSING METHOD FOR SPENT NUCLEAR FUEL
AND INDUCTION HEATING SYSTEM TO BE USED IN PYROCHEMICAL
REPROCESSING METHOD**

CLAIM FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119

Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

January 22, 2002

Sir:

The benefit of the filing dates of the following prior foreign applications are hereby requested for the above-identified application, and the priority provided in 35 U.S.C. 119 is hereby claimed:

Japanese Appln. No. 2001-157410, filed May 25, 2001

In support of this claim, the requisite certified copy of said original foreign application is filed herewith.

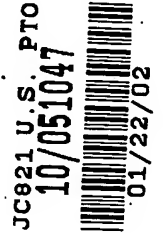
It is requested that the file of these applications be marked to indicate that the applicants have complied with the requirements of 35 U.S.C. 119 and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of said certified copy.

In the event that any fees are due in connection with this paper, please charge our Deposit Account No. 01-2340.

Respectfully submitted,
ARMSTRONG, WESTERMAN & HATTORI, LLP

Atty. Docket No.: **011759**
Suite 1000, 1725 K Street, N.W.
Washington, D.C. 20006
Tel: (202) 659-2930
Fax: (202) 887-0357
KH/ll

Ken-Ichi Hattori
Reg. No. 32,861



日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2001年 5月25日

出 願 番 号

Application Number:

特願2001-157410

出 願 人

Applicant(s):

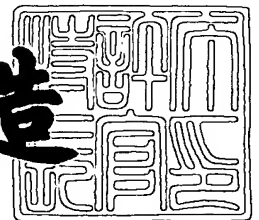
核燃料サイクル開発機構



2001年11月 9日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3099411

【書類名】 特許願

【整理番号】 12007RH

【提出日】 平成13年 5月25日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 G21C 19/42

【発明者】

【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地33 核燃料サイクル開発機構東海事業所内

【氏名】 林 宏

【発明者】

【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地33 核燃料サイクル開発機構東海事業所内

【氏名】 小泉 務

【発明者】

【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地33 核燃料サイクル開発機構東海事業所内

【氏名】 鷲谷 忠博

【発明者】

【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地33 核燃料サイクル開発機構東海事業所内

【氏名】 小泉 健治

【特許出願人】

【識別番号】 000224754

【氏名又は名称】 核燃料サイクル開発機構

【代理人】

【識別番号】 100092495

【弁理士】

【氏名又は名称】 蛭川昌信

【選任した代理人】

【識別番号】 100088041

【弁理士】

【氏名又は名称】 阿部龍吉

【選任した代理人】

【識別番号】 100092509

【弁理士】

【氏名又は名称】 白井博樹

【選任した代理人】

【識別番号】 100095120

【弁理士】

【氏名又は名称】 内田亘彦

【選任した代理人】

【識別番号】 100095980

【弁理士】

【氏名又は名称】 菅井英雄

【選任した代理人】

【識別番号】 100094787

【弁理士】

【氏名又は名称】 青木健二

【選任した代理人】

【識別番号】 100097777

【弁理士】

【氏名又は名称】 菰澤 弘

【選任した代理人】

【識別番号】 100091971

【弁理士】

【氏名又は名称】 米澤 明

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 014867

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 使用済核燃料の乾式再処理法及び乾式再処理法に用いる誘導加熱装置。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 使用済核燃料をるつぼ内の溶融塩中に溶融させて核燃料を析出させる乾式再処理法において、

るつぼを誘導加熱するとともに、冷却媒体を供給して冷却し、加熱と冷却のバランスにより、塩溶融層を保持しつつ、るつぼ内壁面に塩凝固層を生成するようにしたことを特徴とする使用済核燃料の乾式再処理法。

【請求項 2】 前記冷却媒体として水以外の流体を用いることを特徴とする請求項 1 記載の乾式再処理法。

【請求項 3】 塩の昇温加速用にくるつぼ内に補助加熱体を配置することを特徴とする請求項 1 または 2 記載の乾式再処理法。

【請求項 4】 使用済核燃料をるつぼ内の溶融塩中に溶融させて核燃料を析出させる乾式再処理法に用いる誘導加熱装置において、

るつぼを誘導加熱する誘導加熱手段と、るつぼに冷却媒体を供給して冷却する冷却手段とを備えたことを特徴とする乾式再処理法に用いる誘導加熱装置。

【請求項 5】 前記るつぼは、円筒型、円環型、平板型、またはこれら形状を組み合わせた形状であることを特徴とする請求項 4 記載の誘導加熱装置。

【請求項 6】 塩の昇温加速用にくるつぼ内に補助加熱体を配置したことを特徴とする請求項 4 または 5 記載の誘導加熱装置。

【請求項 7】 前記冷却媒体として水以外の流体を用いることを特徴とする請求項 4 記載の誘導加熱装置。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は原子炉で使用した使用済核燃料の乾式再処理法および乾式再処理で用いる誘導加熱装置に関するものである。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

溶融塩を利用した乾式再処理法により使用済核燃料を再処理し、ウランやプルトニウムを回収してリサイクルすることにより、核燃料サイクルの経済性の向上を図るリサイクル方法の研究が日本国内外で行われている。

【0 0 0 3】

酸化物燃料に関する乾式再処理法では、使用済核燃料を溶融塩中に溶融させ、電解によりウランやプルトニウムの酸化物顆粒を析出させて回収する。その主工程例は次の通りである。

- | | |
|-------------------|---|
| ・ 使用済燃料の塩素化溶解工程 | : $\text{UO}_2 + \text{Cl}_2 \rightarrow \text{UO}_2 \text{Cl}_2$ |
| | : $\text{PuO}_2 + \text{C} + \text{Cl}_2 \rightarrow \text{PuCl}_4 + \text{CO}_2$ |
| ・ 酸化ウラン電析回収工程（陰極） | : $\text{UO}_2\text{Cl}_2 \rightarrow \text{UO}_2 + \text{Cl}_2$ |
| ・ 酸化プルトニウム沈殿回収工程 | : $\text{PuCl}_4 + \text{O}_2 \rightarrow \text{PuO}_2 + 2 \text{Cl}_2$ |

なお、再処理に使用するるつぽはパイログラファイト製で、電解析出工程で陽極として作用する。

【0004】

金属燃料に関する乾式再処理法では、使用済核燃料を溶融塩中に溶融させ、電解により金属ウランや金属プルトニウムを析出させて回収する。その主工程例は次の通りである。

- ・使用済燃料の溶解工程 : $U \rightarrow U^{3+} + 3e^{-}$ 、 $Pu \rightarrow Pu^{3+} + 3e^{-}$
- ・金属ウラン電析回収工程（固体陰極） : $U^{3+} + 3e^{-} \rightarrow U$
- ・酸化ウラン・プルトニウム電析回収工程 : $U^{3+} + 3e^{-} \rightarrow U$ 、 $Pu^{3+} + 3e^{-} \rightarrow Pu$
（液体陰極）

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

- ①使用済核燃料を熔融塩中に熔融させる際に用いられている従来の抵抗加熱方式では、槽を直接加熱するため、槽本体が伝熱面となり、塩の熔融温度以上の腐食に厳しい環境となる。
- ②乾式再処理プロセスで用いられる塩素ガス、酸素ガス等に槽材料が直接暴露され、厳しい腐食環境となる。

③塩の溶融の際、従来の金属溶融に用いる誘導電流に対して電気伝導度の違いにより必要な周波数が高い。

④誘導加熱に用いる槽の冷却には水冷却方式を採用することが一般的であるが、万一水と溶融塩が接触すると爆発的現象が生じる。

⑤従来の加熱方式では溶融塩の温度分布を均一に保つために攪拌設備を必要とし、装置構造が複雑となる。

⑥抵抗加熱方式では溶融塩の均一溶融、均一攪拌とするため一般に円柱状形状を採用しなければならない。

などの問題があった。

【 0 0 0 6 】

【課題を解決するための手段】

本発明は乾式再処理法におけるるつぼの耐食性向上や安全性向上などを含む上記課題を解決するものである。

そのために本発明は、使用済核燃料をるつぼ内の溶融塩中に溶融させて核燃料を析出させる乾式再処理法において、るつぼを誘導加熱するとともに、冷却媒体を供給して冷却し、加熱と冷却のバランスにより、塩溶融層を保持しつつ、るつぼ内壁面に塩凝固層を生成するようにしたことを特徴とする。

また、本発明は、使用済核燃料をるつぼ内の溶融塩中に溶融させて核燃料を析出させる乾式再処理法に用いる誘導加熱装置において、るつぼを誘導加熱する誘導加熱手段と、るつぼに冷却媒体を供給して冷却する冷却手段とを備えたことを特徴とする。

【 0 0 0 7 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態を図面を参照して説明する。

図 1 は誘導加熱装置の概略構成を示す図であり、図 1 (a) は一部裁断した斜視図、図 1 (b) は断面図である。

セグメント 1 に分割されたるつぼ 2 を高周波誘導コイル 3 内に配置し、るつぼ内部の被溶融物である塩に直接磁場を作用させる。塩の溶融に際しては、必要により電導体製の補助加熱体 4 を付加する。るつぼ 2 は冷却媒体 5、6 により内部を

冷却する構造を有しており、AC電源13から高周波誘導コイル3への印加電力と冷却とのバランスにより、るつぼ2と熔融塩7との境界に塩の凝固層8が生成される。

【0008】

冷却媒体5、6としては、流体（液体や気体）を用いる。るつぼの冷却には、一般的には、水冷却方式が採用されているが、万一水と熔融塩が接触すると爆発的現象が生じるため、これを回避しようとする場合、沸点が熔融塩温度以上、或いは冷却媒体使用温度以下の冷却媒体を用いることとなる。沸点が熔融塩温度以上の冷却媒体としては、例えば、カリウム（沸点765.5℃）、ナトリウム（沸点881.1℃）等が挙げられ、沸点が使用温度以下である冷却媒体としては、窒素（沸点-195.8℃）、ヘリウム（沸点-268.9℃）等が挙げられる。

【0009】

本発明においては、誘導加熱方式を用いて冷却とのバランスにより、るつぼと熔融塩との境界に塩の凝固層を生成するのが1つの特徴である。なお、図中、9は塩素ガスまたは酸素ガス等の作用ガス用のガス吹込管で、10はオフガス排気管であり、また、陰極11と陽極12には直流電源14から所定の電圧が印加されて陰極11で電析回収される。

【0010】

図2は誘導加熱装置の構成例を示す図である。

るつぼ2を高周波誘導コイル3内に配し、このコイルに対してAC電源13の高周波発生装置から高周波電力を供給してるつぼ2内部の塩を熔融させる。るつぼ2は冷却媒体再冷・循環装置15から冷却媒体が供給され、加熱用高周波電力とのバランスにより、るつぼと熔融塩境界に塩の凝固層を生成する。

【0011】

るつぼの冷却は上記したように液体や気体が使用される。また、使用する塩は、CsCl、NaCl、KClなどの塩、またはそれらの混合塩である。使用する塩の一例であるKCl-NaCl等モル塩の融点は約660℃であり、この塩が熔融している状態でるつぼ内表面温度が試験の一例で約50℃であり、その温

度勾配が塩の凝固層 8 中において生じる。

【0012】

このように、凝固層を生成することでこの中で温度勾配が生ずるため、凝固層を除いた溶融対象を冷却させることなく（溶融状態を維持しつつ）、るつぼ温度を低下させることが可能となり、るつぼの腐食環境を緩和させることができる。また、凝固層を生成させることで、るつぼ内面が塩素ガス、または酸素ガス等に曝される環境を緩和させることができる。以上より、るつぼ材料、すなわち加熱装置材料の長寿命化を図ることが可能となる。

【0013】

次に、いろいろなるるつぼ形状を図 3～図 5 に示す。なお、以下では冷却装置については省略するが、加熱供給電力と冷却とのバランスで凝固層を形成することは上記と同様である。

図 3 はるつぼ形状を円筒型にした例を示す図で、図 3（a）は横断面図、図 3（b）は縦断面図である。

円筒型コイル 2 1 の内側に円筒型るつぼ 2 2 を配置した構造であり、るつぼ内側壁面に塩凝固層 2 3 を生成させながら塩溶融層 2 4 を維持する。昇温を加速する際には、電導体製の補助加熱体 2 5 をるつぼ内に配置する。

【0014】

図 4 はるつぼ形状を円環型にした例を示す図で、図 4（a）は横断面図、図 4（b）は縦断面図である。

外環コイル 3 1 と内環コイル 3 2 の間に外環るつぼ 3 3 と内環るつぼ 3 4 を配置し、環状の両るつぼ壁間に被溶融塩を入れる構造であり、外環と内環の両るつぼ内側壁面に塩凝固層 3 5 を生成させながら塩溶融層 3 6 を維持する。昇温を加速する際には、電導体製の補助加熱体 3 7 をるつぼ内に配置する。

【0015】

図 5 はるつぼ形状を平板型（矩形状）にした例を示す図で、図 5（a）は横断面図、図 5（b）は縦断面図である。

矩形コイル 4 1 の内側に矩形るつぼ 4 2 を配置した構造であり、るつぼ内側壁面に塩凝固層 4 3 を生成させながら塩溶融層 4 4 を維持する。昇温を加速する際に

は電導体製の補助加熱体 4 5 をるつぼ内に配置する。

【 0 0 1 6 】

図 6 はるつぼと誘導加熱コイルとを一体化した例を示す図で、図 6 (a) は横断面図、図 6 (b) は縦断面図、図 6 (c) は部分拡大詳細図である。

本実施例はるつぼと誘導加熱コイルとを一体化し、加熱効率を高くしたものであり、矩形コイル 5 1 の隙間および内側表面にコーティング材をコートしたものをるつぼ 5 2 とし、るつぼ内側壁面に塩凝固層 5 3 を生成させながら塩溶融層 5 4 を維持する。昇温を加速する際には、電導体製の補助加熱体 5 5 をるつぼ内に配置する。るつぼコイルの形状については図 3 ～ 図 5 に示す形状、およびこれらを基本とする変形形状、例えば矩形状で図 4 のような二重構造とするなどを探ることが可能である。

【 0 0 1 7 】

【 発明の効果 】

本発明によれば以下のような効果が達成可能である。

① るつぼ内表面温度の低温化の達成が可能

表 1 は $KCl - NaCl$ 等モル塩を使用した場合の直接加熱（例えば、抵抗加熱）と誘導加熱によるるつぼ内壁面表面温度の比較例を示している。

【 0 0 1 8 】

表 1

加熱方式	直接加熱	誘導加熱
るつぼ内表面温度例	660℃より大	50℃

表 1 から分かるように、従来の直接加熱方式に比して誘導加熱方式においては、冷却装置により、塩溶融層を保持しながら、るつぼ内表面を冷却することが可能である。このため、従来の腐食環境を飛躍的に緩和することができ、材料の長寿命化が可能である。

② 塩凝固層による腐食因子直接接触の回避

塩の凝固層生成の一例を図7に示す。図7において横軸はるつぼ壁面からの距離 (mm)、縦軸は温度 (°C) であり、この例ではるつぼ壁面から8~9 mmの付近に生成された凝固層と溶融層の界面があることが分かる。塩の凝固層部分により、るつぼ壁面と塩素ガス、または酸素ガス等の腐食因子との直接的な接触を回避することが可能である。このため、従来の腐食環境を飛躍的に緩和することができ、材料の長寿命化が可能である。

③補助加熱体を用いることによる昇温の加速

塩の溶融の際、従来の金属溶融に用いる誘電電流に対して電気電導度の違いにより高い周波数を必要とするが、電導体製の補助加熱体をるつぼ内に配置することにより、従来の金属溶融に用いる誘電電流による塩の昇温に対して昇温の加速が可能である。

④水以外の冷却媒体採用による溶融塩と冷却媒体の爆発的現象の防止

誘導加熱に用いる槽の冷却には水冷却方式を採用することが一般的であるが万一水と溶融塩が接触すると爆発的現象が生じることから、水以外の冷却媒体を用いた冷却方式を採用することにより万一の爆発等の危険を回避することが可能である。

⑤誘導加熱によって生じる電磁気力の攪拌効果

図8に誘導加熱による磁場の発生によって生じる攪拌効果の有無を数値解析によって求めた一例を示し、るつぼ中心からるつぼ壁面間での溶融塩の自由表面形状と電磁気力の分布（電気力線と磁力線の分布）を示したもので、電磁気力はるつぼ壁に近いところで密集して強い傾向となる結果が得られた。この電磁気力の不均一に起因して電磁攪拌が発生し、攪拌効果を得ることが可能である。

⑥るつぼ形状の多様化

抵抗加熱方式では溶融塩の均一溶融、均一攪拌とするため一般に円柱形状を採用しているが、上記⑤の攪拌効果により均一溶融、均一攪拌が期待できるため、図3~図5に示するつぼ形状、およびこれらを基本とする変形形状の採用が可能である。

⑦溶融るつぼ以外の装置への適用可能

誘導加熱方式の特徴の一つである非接触加熱であることを利用して、カソード

・ プロセッサ、使用済塩の蒸留洗浄等の加熱方式として採用することが可能である。

【図面の簡単な説明】

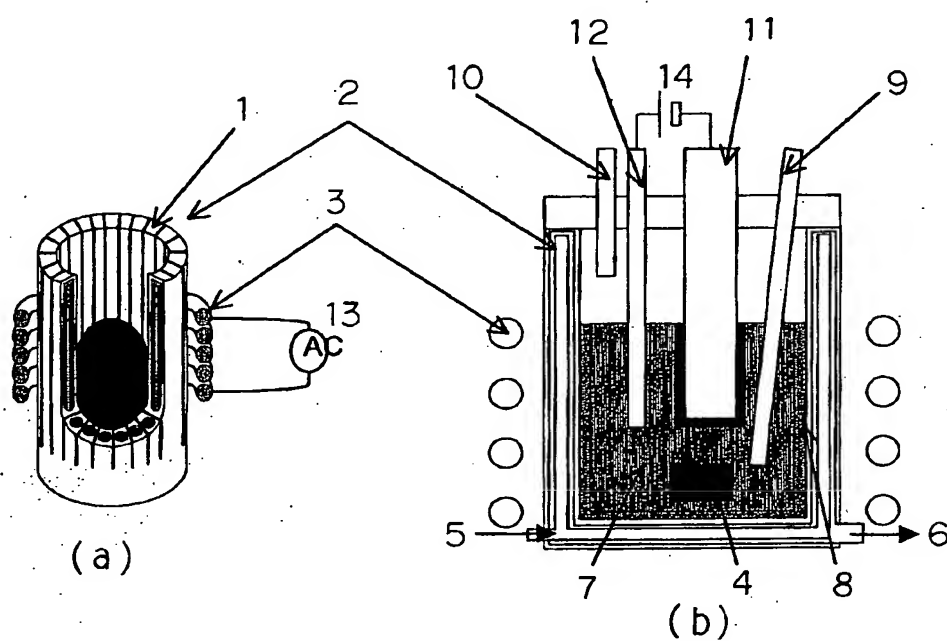
- 【図 1】 誘導加熱装置の概略構成を示す図である。
- 【図 2】 誘導加熱装置の構成例を示す図である。
- 【図 3】 るつぼ形状を円筒型にした例を示す図である。
- 【図 4】 るつぼ形状を円環型にした例を示す図である。
- 【図 5】 るつぼ形状を平板型（矩形状）にした例を示す図である。
- 【図 6】 るつぼと誘導加熱コイルとを一体化した例を示す図である。
- 【図 7】 塩の凝固層生成の一例を示す図である。
- 【図 8】 熔融塩の自由表面形状と電磁気力の分布を示す図である。

【符号の説明】

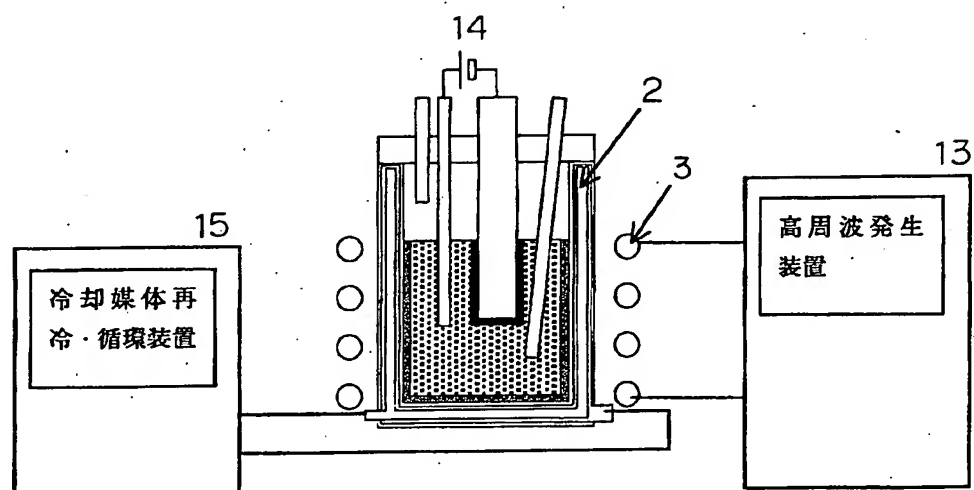
1 … セグメント、 2 … るつぼ、 3 … 高周波誘導コイル、 4 … 補助加熱体、 5, 6 … 冷却媒体、 7 … 熔融塩、 8 … 塩の凝固層、 9 … ガス吹込管、 1 0 … オフガス排気管、 1 1 … 陰極、 1 2 … 陽極、 1 3 … AC 電源、 1 4 … 直流電源。

【書類名】 図面

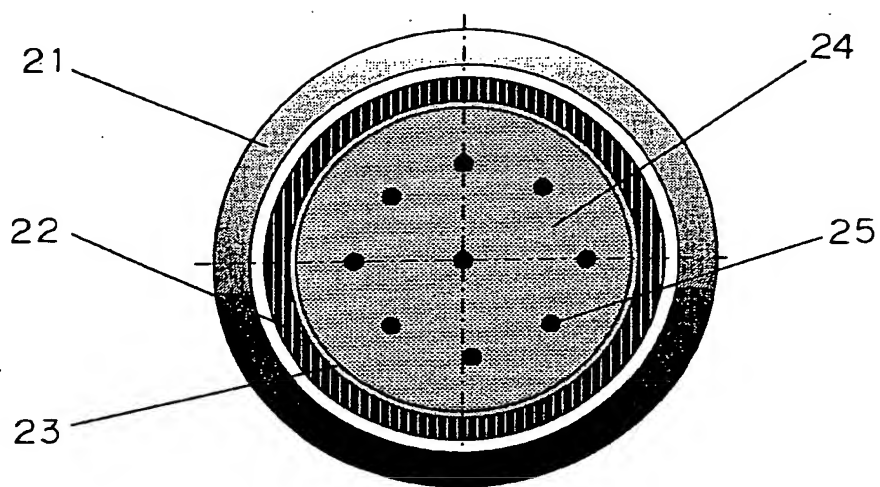
【図1】



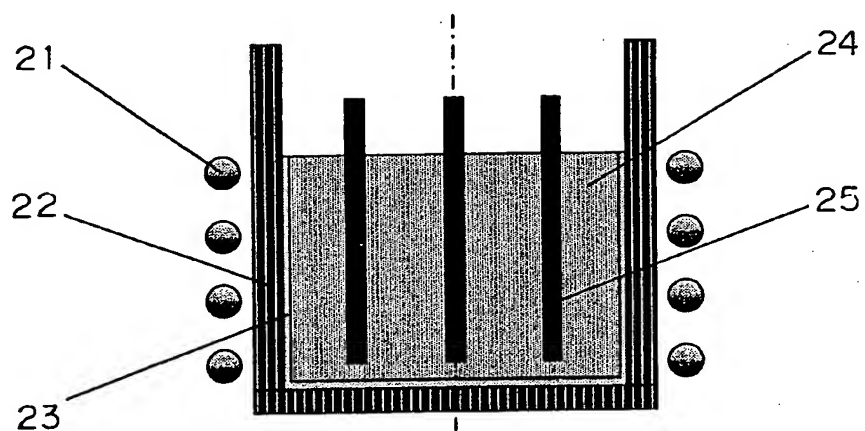
【図2】



【図 3】

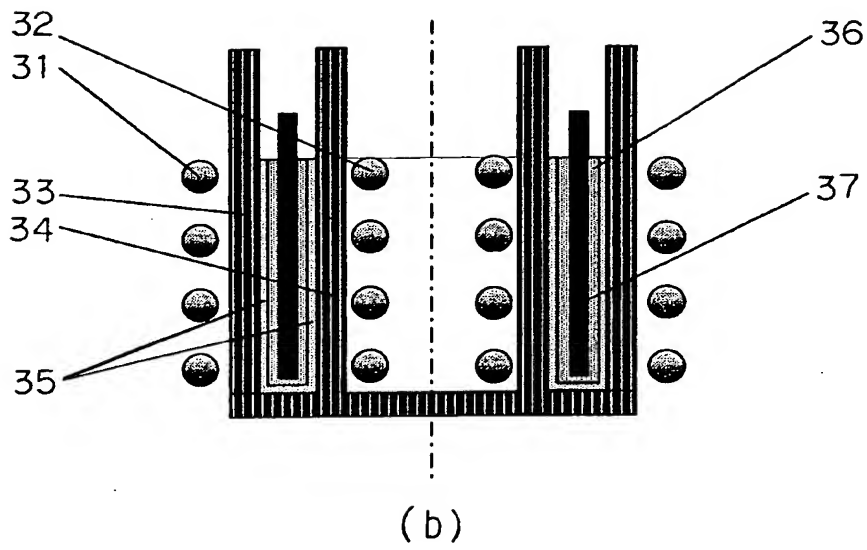
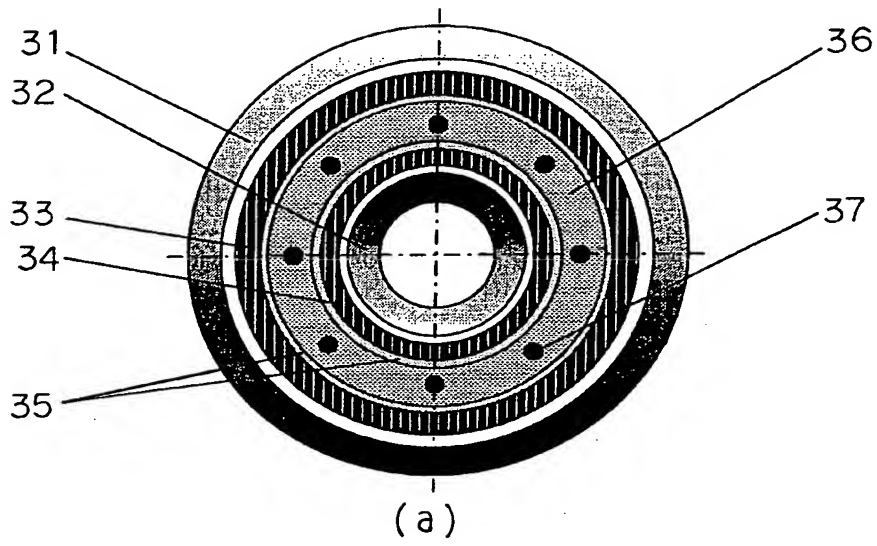


(a)

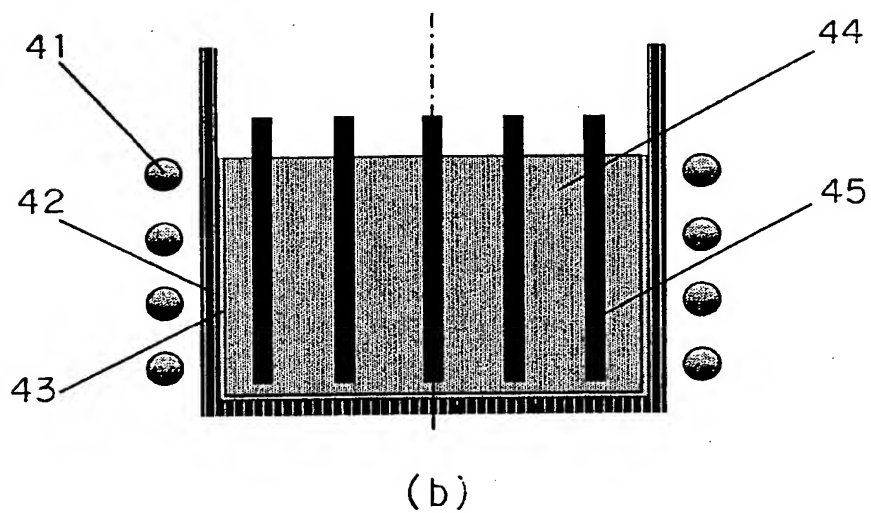
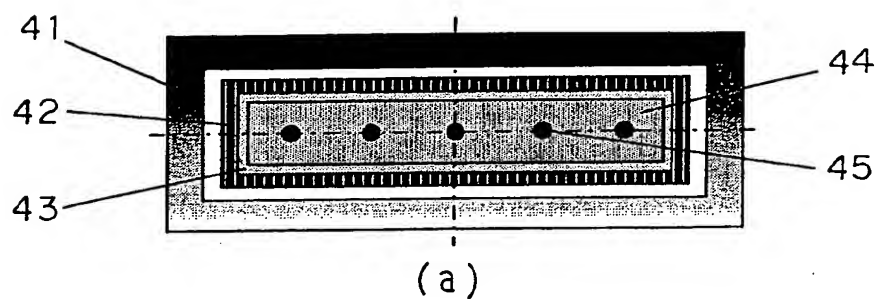


(b)

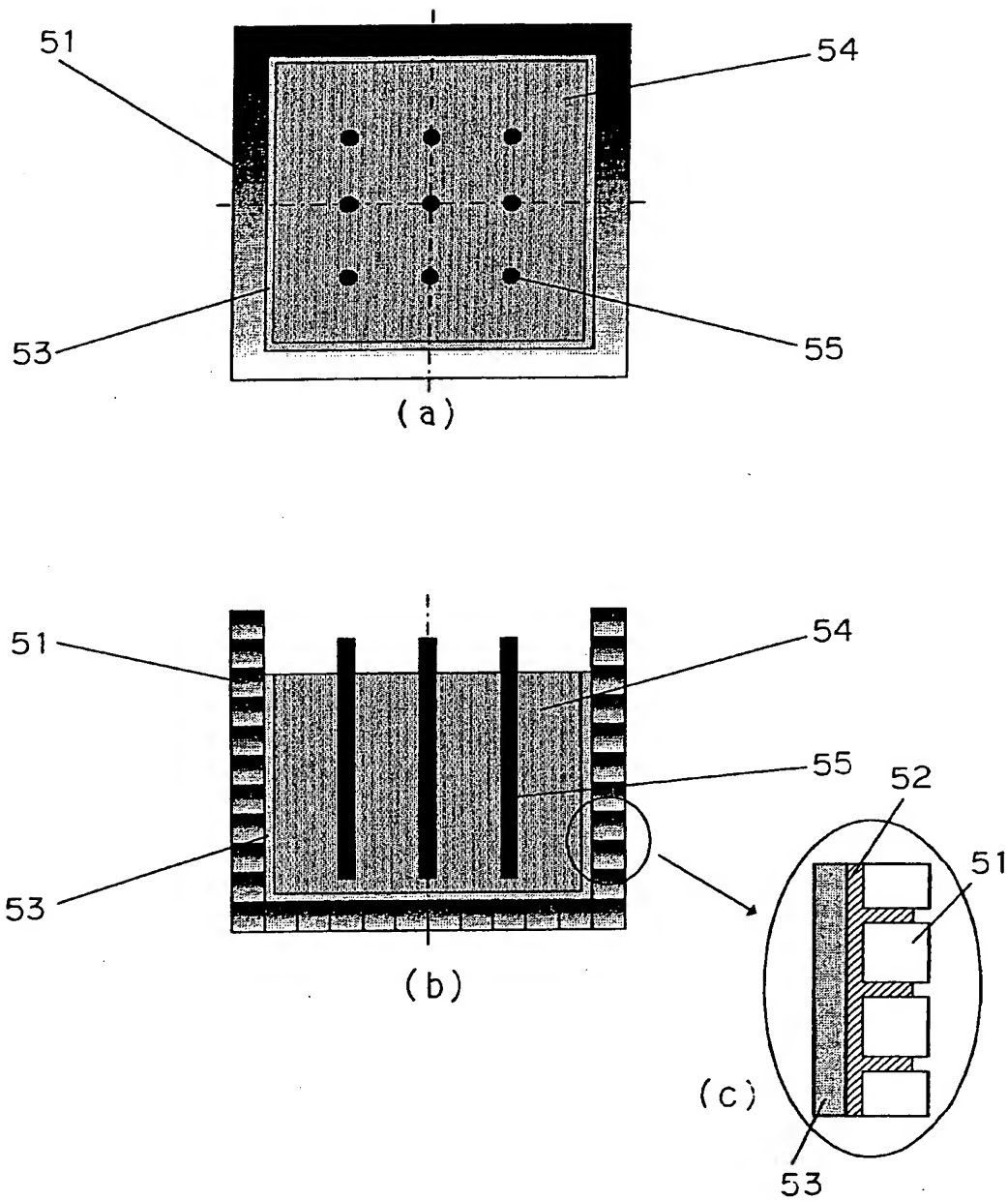
【図4】



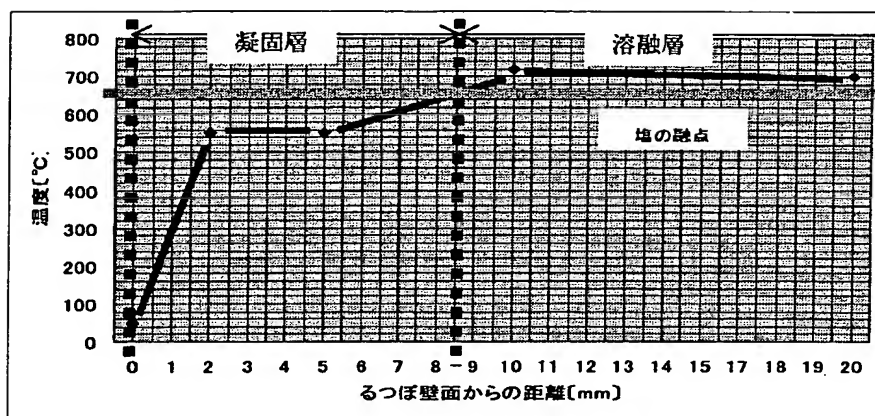
【図 5】



【図 6】

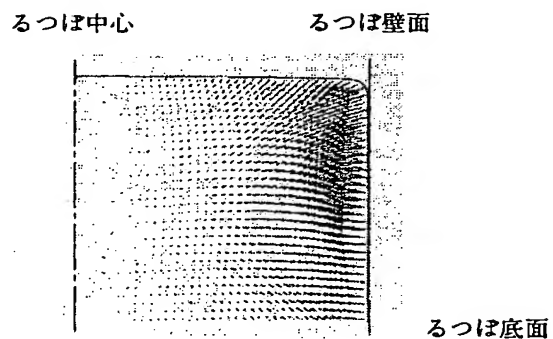


【図 7】



塩の凝固層生成時における温度分布例

【図 8】



熔融塩における電磁気力例 (最大値 = 284 N/m^3)

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 乾式再処理法におけるるつぼの耐食性向上や安全性向上等を図る。

【解決手段】 使用済核燃料をるつぼ内の溶融塩中に溶融させて核燃料を析出させる乾式再処理法において、るつぼ（２）を誘導加熱するとともに、冷却媒体（５、６）を供給して冷却し、加熱と冷却のバランスにより、塩溶融層（７）を保持しつつ、るつぼ内壁面に塩凝固層（８）を生成するようにしたものである。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000224754]

1. 変更年月日	1998年10月 6日
[変更理由]	名称変更
住 所	茨城県那珂郡東海村村松4番地49
氏 名	核燃料サイクル開発機構